



IPW

Practitioner's Docket No.: 791_238

PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re the application of: Kenji SUZUKI

Ser. No.: 10/822,131

Filed: April 9, 2004

Conf. No.: Not Assigned

For: GAS SEPARATOR FIXING STRUCTURE AND GAS SEPARATING
DEVICE USING THE SAME

Commissioner for Patents
P.O. Box 1450
Alexandria, VA 22313-1450

I hereby certify that this correspondence is being deposited
with the United States Postal Service as first class mail
addressed to Commissioner for Patents, P.O. Box 1450,
Alexandria, VA 22313-1450 on May 12, 2004.


Elizabeth A. VanAntwerp

SUBMISSION OF CERTIFIED COPY OF PRIORITY DOCUMENT

Sir:


The benefit of the filing date of the following prior foreign application filed in the
following foreign country was requested by applicants on April 9, 2004 for the
above-identified application:

| <u>Country</u> | <u>Application Number</u> | <u>Filing Date</u> |
|----------------|---------------------------|--------------------|
| Japan | 2001-324411 | October 23, 2001 |

In support of this claim, a certified copy of the Japanese Application is enclosed
herewith.

May 12, 2004
Date

Respectfully submitted,


Stephen P. Burr
Reg. No. 32,970

SPB/eav

BURR & BROWN
P.O. Box 7068
Syracuse, NY 13261-7068

Customer No.: 25191
Telephone: (315) 233-8300
Facsimile: (315) 233-8320

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日 2 0 0 1 年 1 0 月 2 3 日
Date of Application:

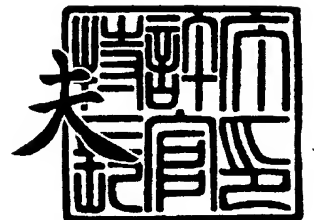
出 願 番 号 特 願 2 0 0 1 - 3 2 4 4 1 1
Application Number:
[ST. 10/C]: [J P 2 0 0 1 - 3 2 4 4 1 1]

出 願 人 日 本 碍 子 株 式 有 限 公 司
Applicant(s):

2 0 0 4 年 4 月 3 0 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号 出証特 2 0 0 4 - 3 0 3 7 6 5 4

【書類名】 特許願

【整理番号】 WP03819

【提出日】 平成13年10月23日

【あて先】 特許庁長官 及川 耕造 殿

【国際特許分類】 C01B 3/50
B01D 71/02

【発明の名称】 ガス分離体固定構造体及びそれを用いたガス分離装置

【請求項の数】 20

【発明者】

【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式
会社内

【氏名】 鈴木 憲次

【特許出願人】

【識別番号】 000004064

【氏名又は名称】 日本碍子株式会社

【代理人】

【識別番号】 100088616

【弁理士】

【氏名又は名称】 渡邊 一平

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009689

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9001231

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ガス分離体固定構造体及びそれを用いたガス分離装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 多孔質セラミックスからなる軸方向に貫通孔を有する筒状基体の少なくとも一方の表面上にガス分離膜が形成されてなるガス分離体を備えたガス分離体固定構造体であって、

該ガス分離体の一方の開口端部には蓋状金属部材が、他方の開口端部には環状金属部材が、各々シール部材を介して圧縮固定されており、

各々の該シール部材がグランドパッキンであることを特徴とするガス分離体固定構造体。

【請求項 2】 蓋状金属部材が、一方のグランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する蓋状若しくは環状パッキン押さえと、

前記一方のグランドパッキンの移動を抑制する下部環状若しくは下部蓋状ストッパーにより構成されるとともに、

環状金属部材が、他方のグランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する環状パッキン押さえと、

前記他方のグランドパッキンの移動を抑制する上部環状ストッパーにより構成される請求項 1 に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 3】 多孔質セラミックスからなる軸方向に貫通孔を有する筒状基体の少なくとも一方の表面上にガス分離膜が形成されてなるガス分離体を備えたガス分離体固定構造体であって、

該ガス分離体の両方の開口端部には、環状金属部材が各々シール部材を介して圧縮固定されており、

各々の該シール部材がグランドパッキンであることを特徴とするガス分離体固定構造体。

【請求項 4】 環状金属部材が、グランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する環状パッキン押さえと、

該グランドパッキンの移動を抑制する環状ストッパーにより構成される請求項 3 に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 5】 筒状基体が複数個の貫通孔を並列的に有する請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 6】 グランドパッキンの使用温度範囲の最高値が 3 0 0℃以上である請求項 1 ～ 5 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 7】 グランドパッキンの非酸化性雰囲気中における使用温度範囲の最高値が 3 5 0℃以上である請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 8】 グランドパッキンの非酸化性雰囲気中における使用温度範囲の最高値が 6 0 0℃以上である請求項 1 ～ 7 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 9】 グランドパッキンの主成分が膨張黒鉛である請求項 1 ～ 8 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 0】 多孔質セラミックスがアルミナである請求項 1 ～ 9 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 1】 ガス分離膜が水素を選択的に透過する水素分離膜である請求項 1 ～ 1 0 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 2】 ガス分離膜がパラジウム又はパラジウムを含有する金属から構成される請求項 1 ～ 1 1 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 3】 蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料の熱膨張係数が $10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下である請求項 1 ～ 1 2 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 4】 蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料がパーマロイである請求項 1 ～ 1 3 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 5】 2 5 0 ～ 1 6 5 0℃の温度範囲で使用される請求項 1 ～ 1 4 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 6】 3 0 0 ～ 6 0 0℃の温度範囲で使用される請求項 1 ～ 1 5 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 7】 被処理ガスの全圧が 0. 1 ～ 1 0 MP a となる圧力範囲で使用される請求項 1 ～ 1 6 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体。

【請求項 1 8】 圧力容器を備えたガス分離装置であって、

請求項 1 ～ 1 7 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体の環状金属部材が該圧力容器の内面に固定されていることを特徴とするガス分離装置。

【請求項 1 9】 流入孔から流入する被処理ガス中における特定のガス成分を、ガス分離膜を透過させて第一の流出孔から流出させるとともに、非透過ガスを第二の流出孔から流出させるガス分離装置であって、

前記流入孔、前記第一の流出孔及び前記第二の流出孔を有する容器の内部に、請求項 3 ～ 1 7 のいずれか一項に記載のガス分離体固定構造体が固定されていることを特徴とするガス分離装置。

【請求項 2 0】 ガス分離体の膨張を吸収する緩衝手段を備えた請求項 1 9 に記載のガス分離装置。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】 本発明は、ガス分離体固定構造体、及び当該ガス分離体固定構造体を用いたガス分離装置に関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】 従来、多成分混合ガスから特定のガス成分のみを得る方法として、有機又は無機のガス分離膜によって分離する方法が知られている。

膜分離法に用いられる分離膜は、水素分離膜としてポリイミドやポリスルホンなどの有機高分子膜及びパラジウム又はパラジウム合金膜などの無機化合物膜が知られている。特に、パラジウム又はパラジウム合金膜は耐熱性もあり、また極めて高純度の水素を得ることができる。

【0 0 0 3】 パラジウム又はパラジウム合金は、水素を固溶して透過させる性質があり、この性質を利用し、パラジウム又はパラジウム合金からなる薄膜は水素を含有する混合ガスから水素を分離する水素分離体に広く用いられている。

【0 0 0 4】 関連する従来技術として、特開昭 6 2 - 2 7 3 0 3 0 号公報、特開昭 6 3 - 1 7 1 6 1 7 号公報において、多孔質基体の一表面にパラジウム又はパラジウム合金からなるガス分離膜が被覆したガス分離体が開示されており、多孔質基体はガラス、酸化アルミニウム等のセラミックスからなるものである。ガ

ス分離膜のみでは機械強度が充分ではないので、ガス分離膜を多孔質基体に被覆させている。

【0 0 0 5】 このようなガス分離体が組み込まれたガス分離装置は、ガス分離体の一方の側より被処理ガスを導入し、特定のガスのみがガス分離体を透過し、ガス分離体の他方の側より精製された水素ガスが得られる構造を有する。従って、被処理ガス側と精製ガス側とを気密に分離して、ガス分離体と支持体との接合部から被処理ガスが精製ガス側に漏洩しないことが重要となる。一方、ガス分離体を使用して水素ガスを効率良く分離するためには、水素原子等がガス分離膜を拡散する速度を早くするため、5～20気圧で300℃以上、好ましくは500℃以上という高温、高圧で分離することが有利である。

【0 0 0 6】 この条件でのガス漏洩を防止するために、一般的にはガス分離体と支持体とをガラス、ろう材等により接合すること（ガラス接合、ろう接合）が行われている。また、ガスの処理温度が250℃以下である場合には、Oリングを用いてガス分離体と支持体の間の気密性を確保することも行われている。

【0 0 0 7】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、前述のガラス接合、又はろう接合によってガス分離体と支持体とを接合すると、熱応力によりガス分離体を構成する多孔質基体が破壊されたり、熱サイクルの負荷に伴ってガス分離体と支持材との間の気密性が低下する等の問題の発生が想定され得る。更に、ガス分離体と支持体とのクリアランスを厳密に制御してこれらを接合する必要性があるばかりでなく、接合温度が高温であるため、熱応力により歪みを生ずる等の不具合が生ずることも想定される。

【0 0 0 8】 また、Oリングを用いてガス分離体と支持体の間の気密性を確保する場合、ガスの処理温度が250℃超であると当該気密性を十分に確保することが実質的に困難であり、使用可能な温度範囲が限定されていた。

【0 0 0 9】 本発明は、このような従来技術の有する問題点に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、熱応力によるガス分離体を構成する基体の破壊や、熱サイクルの負荷による、ガス分離体とこれを支持する支持材との間の気密性低下が起り難いととも、高温条件下においても使用可能なガス分離

体固定構造体、及び、当該ガス分離体固定構造体を用いたガス分離装置を提供することにある。

【0 0 1 0】

【課題を解決するための手段】 即ち、本発明によれば、多孔質セラミックスからなる軸方向に貫通孔を有する筒状基体の少なくとも一方の表面上にガス分離膜が形成されてなるガス分離体を備えたガス分離体固定構造体であって、該ガス分離体の一方の開口端部には蓋状金属部材が、他方の開口端部には環状金属部材が、各々シール部材を介して圧縮固定されており、各々の該シール部材がグランドパッキンであることを特徴とするガス分離体固定構造体を提供される。

【0 0 1 1】 本発明においては、蓋状金属部材が、一方のグランドパッキンに対して、筒状基材の軸方向に締付圧力を付与する蓋状若しくは環状パッキン押さえと、前記一方のグランドパッキンの移動を抑制する下部環状若しくは下部蓋状ストッパーにより構成されるとともに、環状金属部材が、他方のグランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する環状パッキン押さえと、他方のグランドパッキンの移動を抑制する上部環状ストッパーにより構成されることが好ましい。

【0 0 1 2】 また、本発明によれば、多孔質セラミックスからなる軸方向に貫通孔を有する筒状基体の少なくとも一方の表面上にガス分離膜が形成されてなるガス分離体を備えたガス分離体固定構造体であって、該ガス分離体の両方の開口端部には、環状金属部材が各々シール部材を介して圧縮固定されており、各々の該シール部材がグランドパッキンであることを特徴とするガス分離体固定構造体を提供される。

【0 0 1 3】 本発明においては、環状金属部材が、グランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する環状パッキン押さえと、グランドパッキンの移動を抑制する環状ストッパーにより構成されることが好ましく、更に、筒状基体が複数個の貫通孔を並列的に有することが好ましい。

【0 0 1 4】 本発明においては、グランドパッキンの使用温度範囲の最高値が 3 0 0 ℃以上であることが好ましく、グランドパッキンの非酸化雰囲気における使用温度範囲の最高値が 3 5 0 ℃以上であることが好ましく、非酸化雰囲気にお

ける使用温度範囲の最高値が600℃以上であることが更に好ましい。

【0015】 また、本発明においては、グランドパッキンの主成分が膨張黒鉛であることが好ましく、多孔質セラミックスがアルミナであることが好ましい。

【0016】 更に、本発明においては、ガス分離膜が水素を選択的に透過する水素分離膜であることが好ましく、ガス分離膜がパラジウム又はパラジウムを含有する金属から構成されることが好ましい。

【0017】 本発明においては、蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料の熱膨張係数が $10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下であることが好ましく、更に、蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料がパーマロイであることが好ましい。

【0018】 本発明のガス分離体固定構造体は250～1650℃の温度範囲で好適に使用することができ、300～600℃の温度範囲で更に好適に使用することができる。また、被処理ガスの全圧が0.1～10MPaとなる圧力範囲で好適に使用することができる。

【0019】 また、本発明によれば、圧力容器を備えたガス分離装置であって、前述のいずれかのガス分離体固定構造体の環状金属部材が該圧力容器の内面に固定されていることを特徴とするガス分離装置が提供される。

【0020】 なお、本発明によれば、流入孔から流入する被処理ガス中における特定のガス成分を、ガス分離膜を透過させて第一の流出孔から流出させるとともに、非透過ガスを第二の流出孔から流出させるガス分離装置であって、前記流入孔、前記第一の流出孔及び前記第二の流出孔を有する容器の内部に、前述のいずれかのガス分離体固定構造体が固定されていることを特徴とするガス分離装置が提供される。

【0021】 本発明においては、ガス分離体の膨張を吸収する緩衝手段を備えることが好ましい。

【0022】

【発明の実施の形態】 以下、本発明の実施の形態について説明するが、本発明は以下の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、当業者の通常の知識に基づいて、適宜、設計の変更、改良等が加えられることが理解されるべきである。

【0023】 本発明の第一の側面は、多孔質セラミックスからなる軸方向に貫通孔を有する筒状基体の少なくとも一方の表面上にガス分離膜が形成されてなるガス分離体を備えたガス分離体固定構造体であり、ガス分離体の一方の開口端部には蓋状金属部材が、他方の開口端部には環状金属部材が、各々のシール部材を介して圧縮固定されているとともに、各々のシール部材がグランドパッキンであることを特徴とするものである。また、蓋状金属部材は一方のグランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する蓋状若しくは環状パッキン押さえと、前記一方のグランドパッキンの移動を抑制する下部環状若しくは下部蓋状ストッパーにより構成されるとともに、環状金属部材は他方のグランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する環状パッキン押さえと、前記他方のグランドパッキンの移動を抑制する上部環状ストッパーにより構成されていることが好ましい。以下、その詳細について説明する。

【0024】 図1は、本発明のガス分離体固定構造体の一実施態様を示す断面図である。蓋状金属部材1は、蓋状パッキン押さえ2と、下部環状ストッパー3により構成されており、環状金属部材4は、環状パッキン押さえ5と、上部環状ストッパー6により構成されている。なお、環状金属部材4（環状パッキン押さえ5）は、貫通孔7を有するフランジ8と溶接等の接合方法により接合されている。

【0025】 蓋状金属部材1及び環状金属部材4には、ガス分離体10の外周面と接するようにグランドパッキン11・12がシール部材として配置されている。このとき、グランドパッキン11・12を各々少なくとも1個収納可能なスタッフィングボックス13を備え、この内部にグランドパッキン11・12を収納するように配置してもよい。但し、グランドパッキン11・12はガス分離体10の外周面に直に接することが必要である。

【0026】 蓋状パッキン押さえ2及び環状パッキン押さえ5は、グランドパッキン11・12に対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与することができ、下部環状ストッパー3及び上部環状ストッパー6は、グランドパッキン11・12に対して締付圧力が付与されることに伴う当該グランドパッキン11・12の軸方向への移動を抑制する。このとき、移動を抑制されたグランドパッキン1

1・12は、実際上は多少の変形を伴ってガス分離体10の径の内部方向、即ち、ガス分離膜30の膜面に対して垂直方向に適当な圧力で密着し、ガス分離体10と、蓋状金属部材1及び環状金属部材4との間の気密性を確保する。なお、スタフィングボックス13は、その内部に収納されたグランドパッキン11・12に付与された締付圧力を、ガス分離体10へと効果的に伝えることが可能である。

【0027】 蓋状パッキン押さえ2と下部環状ストッパー3が接する部位、及び、環状パッキン押さえ5と上部環状ストッパー6が接する部位には、グランドパッキン11・12への締付圧力を付与及び保持するため、ねじ溝20が形成されていてもよい。また、蓋状パッキン押さえ2、下部環状ストッパー3、環状パッキン押さえ5、及び上部環状ストッパー6の外周部には、レンチ等を用いてのねじ込みを容易にすべく、面取り部21が形成されていてもよい。

【0028】 図2は、本発明のガス分離体固定構造体の別の実施態様を示す断面図である。蓋状金属部材1は、環状パッキン押さえ100と、下部環状ストッパー107により構成されており、環状金属部材4は、環状パッキン押さえ5と、上部環状ストッパー6により構成されている。なお、環状金属部材4（上部環状ストッパー6）は、貫通孔7を有するフランジ8と溶接等の接合方法により接合されている。また、その他の部材、例えばグランドパッキン11・12、スタフィングボックス13等は図1に示すガス分離体固定構造体の場合と同様の位置関係で配置されており、グランドパッキン11・12はガス分離体10の外周面に直に接している。

【0029】 即ち、本発明に係るガス分離体固定構造体においては、環状パッキン押さえによりグランドパッキンに対して締付圧力を付与する方向は、図1、2に示すように筒状基体の軸方向であれば上下いずれの方向であってもよく、目的・用途等に応じて自在な設計が可能である。

【0030】 次に、本発明の第二の側面について説明する。本発明の第二の側面は、多孔質セラミックスからなる軸方向に貫通孔を有する筒状基体の少なくとも一方の表面上にガス分離膜が形成されてなるガス分離体を備えたガス分離体固定構造体であり、ガス分離体の両方の開口端部には、環状金属部材が各々シール

部材を介して圧縮固定されており、各々のシール部材がグランドパッキンであることを特徴とするものである。また、環状金属部材は、グランドパッキンに対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与する環状パッキン押さえと、グランドパッキンの移動を抑制する環状ストッパーにより構成されることが好ましい。以下、その詳細について説明する。

【0031】 図3は、本発明のガス分離体固定構造体の更に別の実施態様を示す断面図である。環状金属部材4は、環状パッキン押さえ5・100と、環状ストッパー3・6により構成されており、環状金属部材4（環状パッキン押さえ5・100）は、貫通孔7を有するフランジ8、又は当該ガス分離体固定構造体が取着される容器本体104等と溶接等の接合方法により接合されている。

【0032】 環状金属部材4には、ガス分離体10の外周面と接するようにグランドパッキン11・12がシール部材として配置されている。このとき、グランドパッキン11・12を各々少なくとも1個収納可能なスタフィングボックス13を備え、この内部にグランドパッキン11・12を収納するように配置してもよい。但し、グランドパッキン11・12はガス分離体10の外周面に直に接することが必要である。

【0033】 環状パッキン押さえ5・100は、グランドパッキン11・12に対して、筒状基体の軸方向に締付圧力を付与することができ、環状ストッパー3・6は、グランドパッキン11・12に対して締付圧力が付与されることに伴う当該グランドパッキン11・12の軸方向への移動を抑制する。このとき、移動を抑制されたグランドパッキン11・12は、実際上は多少の変形を伴ってガス分離体10の径の内部方向、即ち、ガス分離膜30の膜面に対して垂直方向に適切な圧力で密着し、ガス分離体10と、環状金属部材4との間の気密性を確保する。なお、スタフィングボックス13は、その内部に収納されたグランドパッキン11・12に付与された締付圧力を、ガス分離体10へと効果的に伝えることが可能である。

【0034】 環状パッキン押さえ5・100と環状ストッパー3・6が接する部位には、グランドパッキン11・12への締付圧力を付与及び保持するため、ねじ溝20が形成されていてもよい。また、環状パッキン押さえ5・100、及

び環状ストッパー 3・6 の外周部には、レンチ等を用いてのねじ込みを容易にすべく、面取り部 2 1 が形成されていてもよい。

【0 0 3 5】 既に述べたように、図 3 に示すガス分離体固定構造体の場合であっても環状パッキン押さえによりグラントパッキンに対して締付圧力を付与する方向は筒状基体の軸方向であれば上下いずれの方向であってもよく、目的・用途等に応じて自在に設計することができる。

【0 0 3 6】 本発明のガス分離体固定構造体は、ガラス接合、ろう接合等を採用せず、シール材としてのグラントパッキンを介してガス分離体を各金属部材に圧縮固定しているために、熱膨張差に起因するガス分離体の破損等が生じ難く、また、ガス分離体の実使用に際して温度が上昇した場合であっても気密性が充分に確保されるとともに、熱サイクルの負荷に対しても優れた耐久性を示す。更には、高温下においてパッキン押さえ等の増し締め等を行う必要性がなく、保守・点検等の手間も削減される。

【0 0 3 7】 本発明においては、筒状基体が複数個の貫通孔を並列的に有することが好ましい。但し、筒状基体の形状は円柱状に限定されるものではなく、例えば、角柱状であってもよく、例えば円柱、角柱がその軸に沿って湾曲した形状であってもよい。また、貫通孔の形状は直線状のものに限定されるものではなく、例えば曲線状の形状であってもよい。

【0 0 3 8】 また、本発明においてはグラントパッキンの使用温度範囲の最高値が 3 0 0 ℃ 以上であることが好ましく、3 5 0 ℃ 以上であることが更に好ましく、4 5 0 ℃ 以上であることが特に好ましい。グラントパッキンの使用温度範囲の最高値が 3 0 0 ℃ 未満である場合には、一般的に想定される高温条件下での使用に適合せず、十分なシール性を維持できないためである。なお、本発明においてはグラントパッキンの使用温度範囲の最高値の上限値について特に限定されるものではないが、実質的な耐熱性等の観点からは、概ね 1 6 5 0 ℃ 以下のものであればよい。

【0 0 3 9】 更に、本発明においてはグラントパッキンの非酸化性雰囲気中における使用温度範囲の最高値が 3 5 0 ℃ 以上であることが好ましく、4 5 0 ℃ 以上であることが更に好ましく、6 0 0 ℃ 以上であることが特に好ましい。パッキ

ンの非酸化性雰囲気中における使用温度範囲の最高値が 3 5 0 ℃未満である場合には、一般的に想定される非酸化性雰囲気中、高温条件下での使用に適合せず、十分なシール性を維持できないためである。なお、本発明においてはグランドパッキンの非酸化性雰囲気中における最高使用温度の上限値について特に限定されるものではないが、実質的な耐熱性等の観点からは、概ね 1 6 5 0 ℃以下のものであればよい。

【0 0 4 0】 また、本発明においては、グランドパッキンの主成分が膨張黒鉛であることが好ましい。膨張黒鉛を主成分とするグランドパッキンは高耐熱性、高耐圧性を示すとともに優れた弾性体であるため、これを用いた本発明のガス分離体固定構造体はガス分離体と、蓋状金属部材及び環状金属部材との間の気密性を十分に確保することができ、高温・高圧条件下において使用可能である。

【0 0 4 1】 なお、膨張黒鉛以外に使用温度範囲の最高値が 3 0 0 ℃以上となる耐熱性を示すパッキンの材質としては、石綿繊維、金属繊維等を挙げることができるが、石綿繊維は人体に対する悪影響（健康障害の発生等）が懸念されるために、金属繊維は圧縮固定されるガス分離膜表面に傷をつける恐れがあるために好ましくない。従って、グランドパッキンの主成分を膨張黒鉛とすることにより、これらの問題が回避される。

【0 0 4 2】 本発明のガス分離体固定構造体を構成する部材の 1 つである多孔質セラミックスからなる筒状基体は、ガス分離膜単独では機械強度が弱いので、ガス分離膜を支持するものである。ここでいう多孔質とは、例えば、三次元的に連続した多数の微細な小孔を有することを意味するものであり、その孔径は 0 . 0 0 3 ~ 2 0 μ m が好ましく、更に 0 . 0 0 5 ~ 5 μ m が好ましい。孔径が 0 . 0 0 3 μ m 未満ではガスが通過するときの抵抗が大きくなるからである。一方、孔径が 2 0 μ m を超えるとガス分離膜にピンホールが生じやすくなり、好ましくない。

【0 0 4 3】 本発明においては筒状基体を構成する多孔質セラミックスがアルミナであることが好ましく、被処理ガスが反応しないという効果を奏する。また、アルミナよりなる多孔質の筒状基体は所望とする形状に、容易に作製することができ、例えば、特開昭 6 2 - 2 7 3 0 3 0 号公報に記載する方法により作製す

ることができる。

【0 0 4 4】 また、本発明においてはガス分離膜が水素を選択的に透過する水素分離膜であることが好ましく、このような選択透過性を示すガス分離膜を構成する金属としては、パラジウム又はパラジウムを含有する金属が好ましい。パラジウムを含有する金属とは、パラジウム単体と、パラジウム合金とを包含する。パラジウム合金は、Journal of Membrane Science, 56(1991)315-325: “Hydrogen Permeable Palladium-Silver Alloy Membrane Supported on Porous Ceramics”、特開昭 6 3 - 2 9 5 4 0 2 号公報に記載されているように、パラジウム以外の金属の含量は 1 0 ~ 3 0 質量%であることが好ましい。パラジウムを合金化する主目的は、パラジウムの水素脆化防止と高温時の分離効率向上のためである。また、パラジウム以外の金属として銀を含有することは、パラジウムの水素脆化防止のため、好ましい。

【0 0 4 5】 なお、ガス分離膜が被覆する面は、筒状基体の外側でも、内側でも、或いはこの両者でもよく、ガス分離膜を筒状基体に被覆する方法は一般的な公知の方法が使用でき、例えば、化学メッキ法、真空蒸着法、スパッタリング法等を用いることができる。

【0 0 4 6】 本発明においては、蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料の使用温度範囲内の熱膨張係数が $10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 以下であることが好ましく、 $9 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 以下であることが更に好ましく、 $8 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 以下であることが特に好ましい。通常、多孔質セラミックスからなる筒状基体の熱膨張係数は $10 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 以下であり、グランドパッキンの応力値の変動制御、及び筒状基体の破損防止等の観点から、筒状基体と、蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料の熱膨張係数は近似していることが好ましいためである。従って、蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料の熱膨張係数を当該数値以下とすることにより、高温条件下における被分離ガスのリーク発生や筒状基体の破損等を防止することができる。

【0 0 4 7】 なお、本発明においては蓋状金属部材及び／又は環状金属部材の構成材料の熱膨張係数の下限値については特に限定されるものではないが、材料入手の容易性等の観点からは概ね $0.5 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$ 以上であれば問題なく用い

ることができる。

【0048】 また、本発明における前述の熱膨張係数が $10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以下である蓋状金属部材及び／又は環状金属部材として好適な構成材料金属の具体例として、パーマロイ、コバル、インバー、スーパーインバー、モリブデン、タングステン、鉄・ニッケル合金等を挙げることができ、特にパーマロイであることが好ましく、このことにより、高温条件下における被分離ガスのリーク発生や筒状基体の破損等を効果的に防止することが可能である。

【0049】 なお、ガス分離体10の外周側から内周側へと透過してきた分離ガスに、ガス分離体10とグランドパッキン11・12のシール面から不可避免的に侵入する極微量の被処理ガス（分離されていないガス）が混在することになる（図1）。但し、得られる分離ガスの用途を考慮した場合、当該用途に影響を与えない程度の混在率であれば極微量の被処理ガスの混在は許容されと考えられる。例えば、得られる分離ガスが水素ガスであって、これを燃料電池用水素精製機として使用することを想定した場合、当該水素ガスの純度は99体積%以上であれば十分に許容され得る。

【0050】 従って、例えば蓋状金属部材1及び環状金属部材4の材質をSUS304（熱膨張係数： $17 \text{ ppm}/^{\circ}\text{C}$ ）とした場合、その熱膨張係数は多孔質セラミックスの2～3倍であるため、高温条件下においてはグランドパッキン11・12の応力低下に伴って極微量の被処理ガスのリーク発生も予測されるが、得られる分離ガスの用途により本発明のガス分離体固定構造体は好適に採用される（図1）。

【0051】 本発明のガス分離体固定構造体は、その熱応力や熱サイクルに対する優れた耐久性から、 $250 \sim 1650^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で好適に使用することができ、 $300 \sim 600^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で更に好適に使用することができる。また、被処理ガスの全圧が $0.1 \sim 10 \text{ MPa}$ となる圧力範囲で好適に使用することができる。

【0052】 次に、本発明の第三の側面について説明する。本発明の第三の側面は圧力容器を備えたガス分離装置であり、上述してきたいずれかのガス分離体固定構造体の一部である環状金属部材が、圧力容器の内面に固定されていること

を特徴とするガス分離装置である。以下、その詳細について説明する。

【0 0 5 3】 図 1 に示す構造のガス分離体固定構造体を組み込んだ場合を想定して説明する。環状金属部材 4、更に具体的には環状パッキン押さえ 5 の一部分が、フランジ 8 等に適当な接合方法、例えば溶接等により接合されることによって、ガス分離装置の構成要素である圧力容器（図示せず）の内面に固定される。ガス分離体 1 0 の一方の開口端部はグランドパッキン 1 1 を介して蓋状金属部材 1 によって気密に閉じられているため、ガス分離体 1 0 を透過した分離ガスは、環状金属部材 4 が固定されている開口端部（貫通孔 7）の方向へと流れ、圧力容器の外部に取り出される。なお、被処理ガス中の他のガスはガス分離体を透過せず、出口（図示せず）より排出される。

【0 0 5 4】 ここで、本発明のガス分離装置では、ガス分離体固定構造体が圧力容器の内面に固定されている箇所はガス分離体固定構造体において、貫通孔 7 を有する一方の端部のみであり、蓋状金属部材 1、即ち、他方の端部は圧力容器の内面に固定されていない（図 1）。従って、熱サイクルの負荷に起因するガス分離体の膨張・収縮による破損が極めて生じ難く、長期間の使用が可能であるという効果を奏する。

【0 0 5 5】 次に、本発明の第四の側面について説明する。本発明の第四の側面は、流入孔から流入する被処理ガス中における特定のガス成分を、ガス分離膜を透過させて第一の流出孔から流出させるとともに、非透過ガスを第二の流出孔から流出させるガス分離装置であり、流入孔、第一の流出孔及び第二の流出孔を有する容器の内部に、ガス分離体の両方の開口端部に環状金属部材が各々シール部材を介して圧縮固定されている、いずれかのガス分離体固定構造体が固定されていることを特徴とするものである。以下、その詳細について説明する。

【0 0 5 6】 図 4 は、本発明のガス分離装置の一実施態様を示す断面図である。図 4 において、流入孔 1 0 1 より導入された被処理ガスは、フランジ 8 の貫通孔 7 を介して、ガス分離体 1 0 の一端よりその内部に入る。分離ガスは、ガス分離膜 3 0 を選択的に透過し、ガス分離体 1 0 の外部に出、流出孔 1 0 2 より流出する。一方、非透過ガスは、ガス分離 1 0 の他端より、流出孔 1 0 3 を介して排出される。

【0057】 上述の如く、被処理ガスをガス分離体の内部より導入する場合において、ガス分離体の一端より被処理ガスを導入し、他端より非透過ガスを排出する場合には、ガス分離体をその一端において容器本体の内部に支持するとともに、ガス分離体の両端を容器本体の流出孔或いは流入孔と連通させることが必要となる。従って、ガス分離体と容器本体との熱膨張差によりガス分離装置が損傷したり、ガス分離体と容器本体の流出孔或いは流入孔を連結する構造が損傷を受ける可能性がある。本発明においてはガス分離体の膨張を吸収するような緩衝手段を備えることが好ましく、このことにより、前述の事態が起こることを防ぐことができる。

【0058】 具体的には、図4に示すように容器本体104とガス分離体10との熱膨張差によりガス分離装置が損傷するのを防ぐために、容器本体104の外周面を蛇腹状の形状とし、ガス分離体10の軸方向における伸張を許容する構造とすればよい。蛇腹部は透過ガスの圧力を受けるが、透過ガスの圧力は、一般に陰圧 $\sim 2 \text{ kg/cm}^2$ と小さいため、蛇腹が伸びるように作用する力は無視することができる。

また、この他の方法として、貫通孔と容器の流出孔或いは流入孔の連結に、バネ状に巻いた、弾性を有するパイプを用いる等の方法がある。

【0059】

【実施例】 以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

(ガス分離体)

ガス分離体には、外径10.7mm、内径7.5mm、長さ40mmの円筒形状を有し、小孔径が $0.1 \mu\text{m}$ であるアルミナ製の基体に、厚さ $18 \mu\text{m}$ の金属パラジウムがメッキされたものを用いた。また、グランドパッキンは膨張黒鉛性編組グランドパッキンを、各金属部材は45パーマロイ製のものを用いた。なお、基体の熱膨張係数は $7.1 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ($40 \sim 300^{\circ}\text{C}$)、 $7.7 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ($40 \sim 600^{\circ}\text{C}$)であり、各金属部材の熱膨張係数は $7.3 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ($40 \sim 300^{\circ}\text{C}$)、 $9.9 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ ($40 \sim 600^{\circ}\text{C}$)であった。

【0060】

(ガス分離体固定構造体の製造)

図 1 に示すような構成のガス分離体固定構造体を作製した。まず、スタフィン
グボックス 1 3 にグランドパッキン 1 1 ・ 1 2 を 2 個ずつ収納し、グランドパッ
キン 1 1 ・ 1 2 に接触するまで蓋状パッキン押さえ 2 及び環状パッキン押さえ 5
を軽くねじ込み、グランドパッキン 1 1 ・ 1 2 を仮固定した。次に、蓋状金属部
材 1 及び環状金属部材 4 に、前述のガス分離体 1 0 を挿入した。このとき、ガス
分離体 1 0 の開口端部がグランドパッキン 1 1 ・ 1 2 よりも深い位置となるまで
挿入した。その後、蓋状パッキン押さえ 2 及び環状パッキン押さえ 5 を、トルク
レンチを用いて、軸方向への締付圧力が 2 0 M P a、径の内部方向（ガス分離膜
の膜面に対して垂直方向）への締付圧力が約 1 0 M P a となるように締め込むこ
とにより、ガス分離体固定構造体を製造した。

【0 0 6 1】

(気密試験)

気密試験のため、前述のガス分離体固定構造体を、金属ガスケットを介して圧
力容器に固定することにより、ガス分離装置を製造した。

気密試験は、ガス分離体の被処理側（外周側）に 0 . 9 M P a の圧力でアルゴ
ンガスを導入・保持した状態で、ガス分離体を室温から 6 0 0 ℃まで加熱し、次
いで、室温まで冷却した。この温度サイクルを 5 回繰り返し、室温（2 5 ℃）、
3 0 0 ℃、及び 6 0 0 ℃の各時点において、分離ガス側（内周側）に漏洩するア
ルゴンガスの流量を測定した。結果を表 1 に示す。

【0 0 6 2】

【表 1】

| 実施例 | | アルゴンガス 流量 (m l / m i n) | | |
|--------------|---|-------------------------|---------|---------|
| | | 測定温度 | | |
| | | 2 5 ℃ | 3 0 0 ℃ | 6 0 0 ℃ |
| サイクル数 (回) | 1 | 0.4 | 0.1 | 0.3 |
| | 2 | 0.7 | 0.4 | 0.3 |
| | 3 | 0.8 | 0.4 | 0.3 |
| | 4 | 1.0 | 0.5 | 0.4 |
| | 5 | 1.1 | 0.5 | 0.4 |

【 0 0 6 3 】

(考察)

許容されるシール部からのガス漏洩量（シール部ガス漏洩許容量）は、分離膜の面積・水素透過量、及び分離膜のピンホールからの被処理ガスの漏洩量等に依存する。これらの諸条件を勘案し、300℃におけるシール部ガス漏洩許容量を約30ml/minと想定する。このとき、表1に示す結果から明らかなように、本発明のガス分離体固定構造体は、温度サイクルが経過してもアルゴンガスの漏洩は極微量、即ち、前記シール部ガス漏洩許容量の1/60（数十分の一）程度に抑制されているとともに、低温（25℃）域から高温（600℃）域に至るまで、十分な気密性が確保されていることが判明した。

【 0 0 6 4 】

【発明の効果】 以上説明したように、本発明のガス分離体固定構造体は、ガス分離体の開口端部に所定の金属部材がグランドパッキンを介して圧縮固定されているため、熱応力によるガス分離体を構成する基体の破壊や、熱サイクルの負荷によるガス分離体と、これを支持するための支持材である金属部材との間の気密性低下が起り難いととも、高温条件下においても使用可能であるといった利点を有する。

また、本発明のガス分離装置によれば、上述のガス分離体固定構造体が所定の状態で圧力容器の内面に固定されているため、熱サイクルの負荷に起因するガス分離体の膨張・収縮による破損が極めて生じ難く、長期間の使用が可能である。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明のガス分離体固定構造体の一実施態様を示す断面図である。

【図2】 本発明のガス分離体固定構造体の別の実施態様を示す断面図である。

【図3】 本発明のガス分離体固定構造体の更に別の実施態様を示す断面図である。

【図4】 本発明のガス分離装置の一実施態様を示す断面図である。

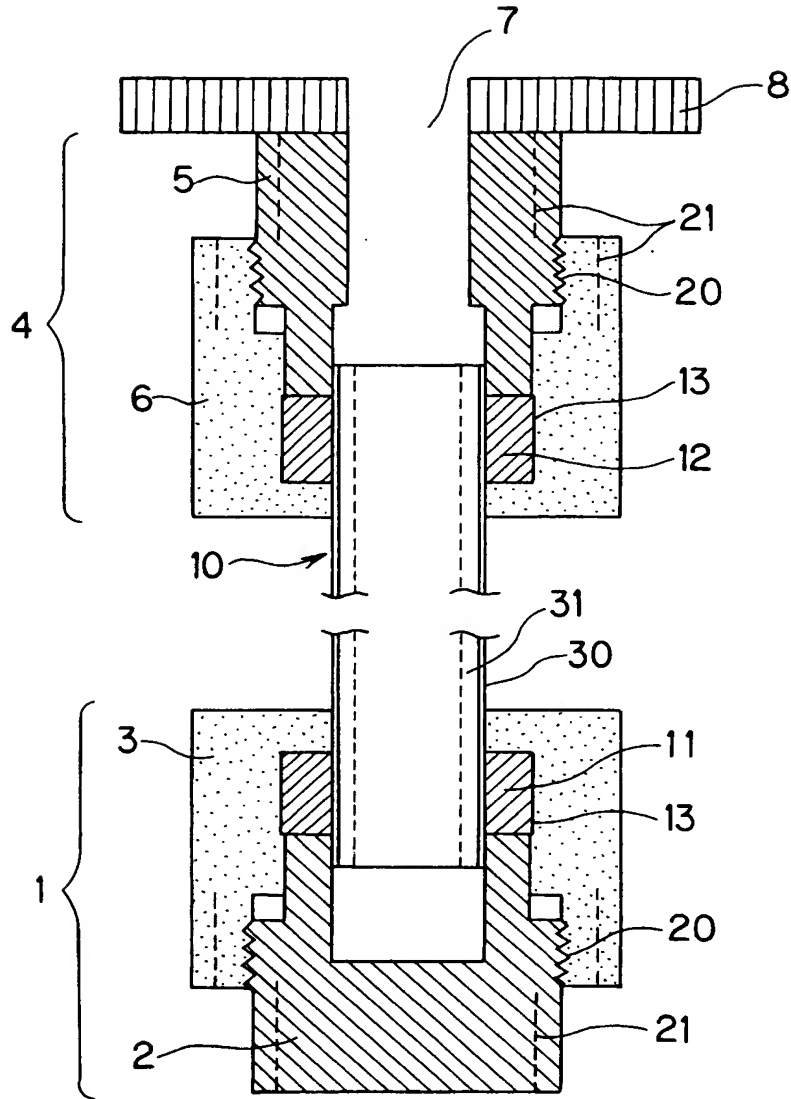
【符号の説明】

1…蓋状金属部材、2…蓋状パッキン押さえ、3…下部環状ストッパー、4…環状金属部材、5…環状パッキン押さえ、6…上部環状ストッパー、7…貫通孔、

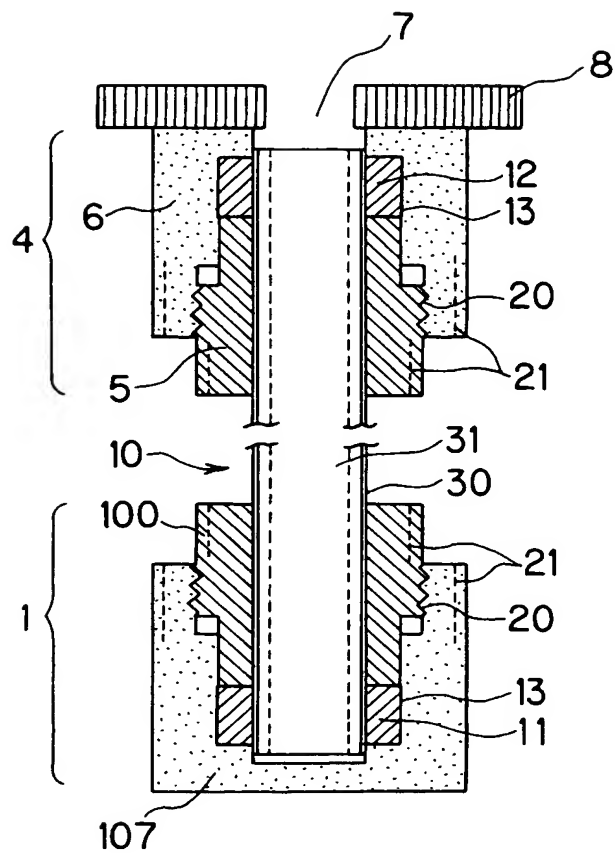
8…フランジ、10…ガス分離体、11・12…グランドパッキン、13…スタフリングボックス、20…ねじ溝、21…面取り部、30…ガス分離膜、31…筒状基体、100…環状パッキン押さえ、101…流入孔、102…流出孔、103…流出孔、104…容器本体、105…蓋体、106…固定部材、107…下部蓋状ストッパー。

【書類名】 図面

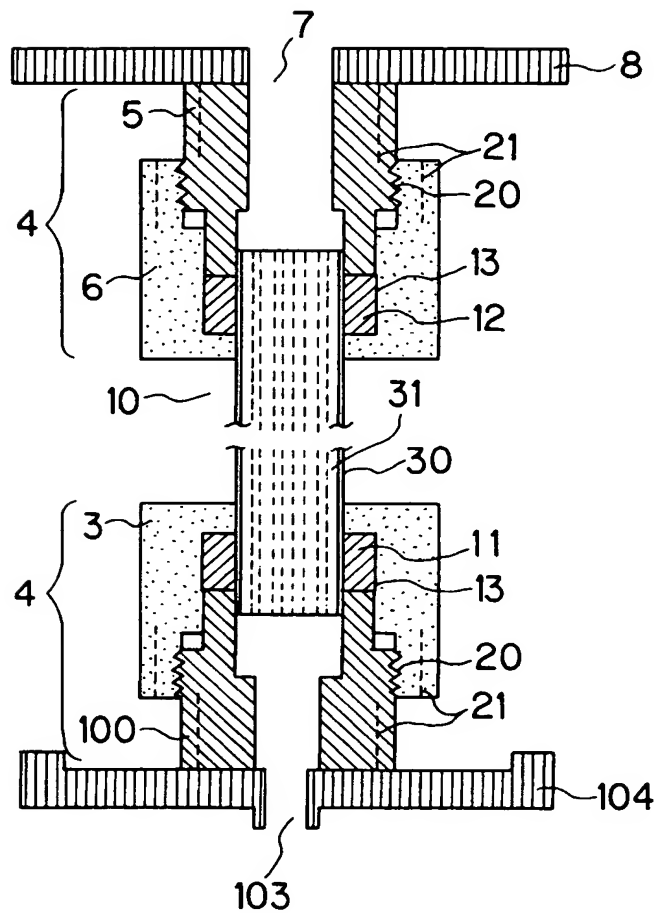
【図 1】



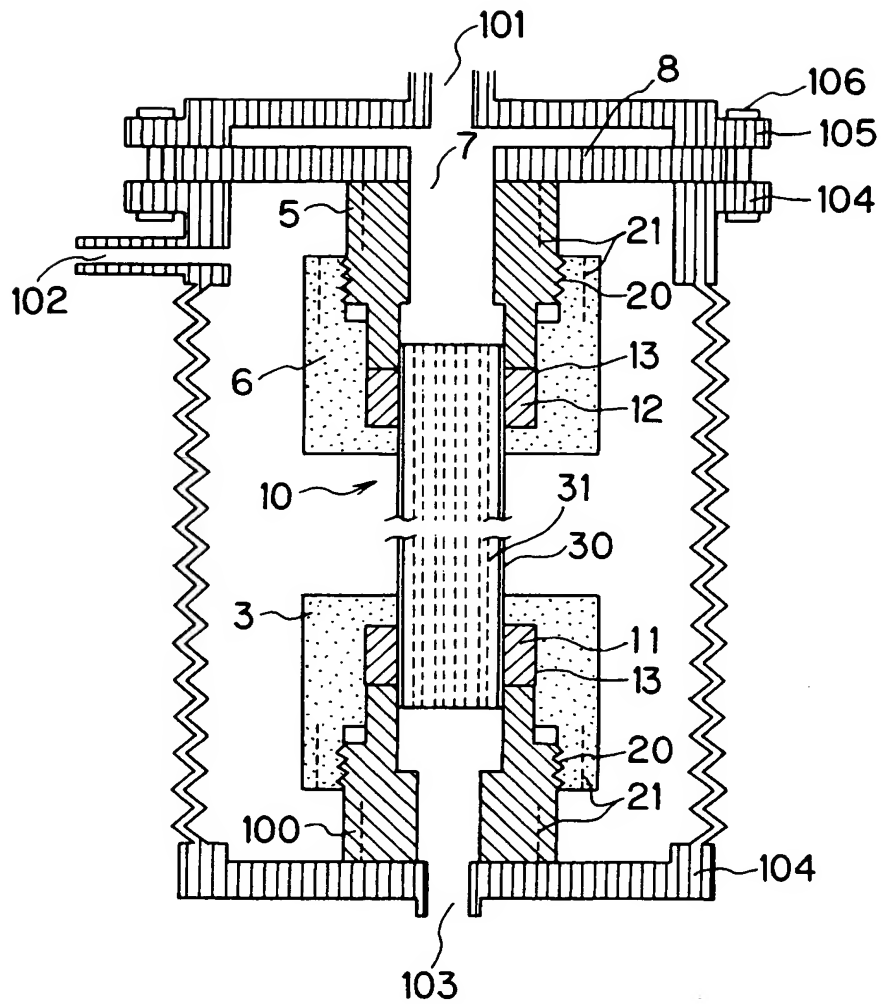
【図 2】



【図 3】



【図 4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 熱応力によるガス分離体を構成する基体の破壊や、熱サイクルの負荷による、ガス分離体とこれを支持する支持材との間の気密性低下が起こり難いとともに、高温条件下においても使用可能なガス分離体固定構造体、及び、当該ガス分離体固定構造体を用いたガス分離装置を提供する。

【解決手段】 多孔質セラミックスからなる軸方向に貫通孔を有する筒状基体 3 1 の少なくとも一方の表面上にガス分離膜 3 0 が形成されてなるガス分離体 1 0 を備えたガス分離体固定構造体である。ガス分離体 1 0 の一方の開口端部には蓋状金属部材 1 が、他方の開口端部には環状金属部材 4 が、各々シール部材を介して圧縮固定されており、各々のシール部材がグランドパッキン 1 1 ・ 1 2 である。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 1 - 3 2 4 4 1 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 4 0 6 4]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 4 日

[変更理由]

新規登録

住 所

愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号

氏 名

日本碍子株式会社